

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-007897

(43)Date of publication of application : 12.01.1996

(51)Int.Cl.

H01M 4/86

H01M 4/88

H01M 8/02

(21)Application number : 06-138575

(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing : 21.06.1994

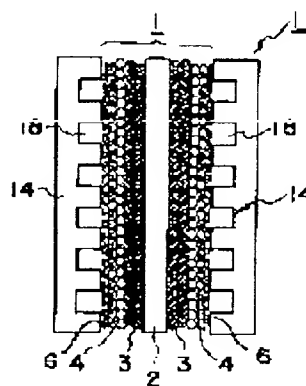
(72)Inventor : MIZUNO SEIJI

## (54) FUEL CELL JUNCTION BODY AND MANUFACTURE THEREOF

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide a fuel cell junction body capable of enhancing gas diffusion capability, making exhaust water control of excess water easy, and preventing cell performance drop caused by concentration polarization.

CONSTITUTION: A junction body 1 of a fuel cell comprises an electrolyte film 2, a catalytic reaction layer 3 whose main component is carbon particles on which catalysts are carried, and a gas diffusion layer 4 made of carbon particles and water repellent resin, formed by sticking carbon short fibers at least on the surface on the opposite side to the catalytic reaction layer 3 in the state intertwined with the carbon particles. In the junction body 1, since the conductive carbon fibers intertwined each other cover the surface of the gas diffusion layer 4, an electrode can be made thin with conductivity with a separator (current collector) 14 ensured, strength of the gas diffusion layer 4 ensured, the catalytic reaction layer 3 protected without use of an electrode substrate such as carbon cloth and carbon paper. Therefore, gas diffusion capability and excess water exhausting capability are enhanced and high rate performance is improved.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

11.01.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C): 1998,2000 Japanese Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-7897

(43) 公開日 平成8年(1996)1月12日

(51) Int.Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

H 0 1 M 4/86  
4/88  
8/02

Z  
C  
E 9444-4K

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平6-138575

(22) 出願日 平成6年(1994)6月21日

(71) 出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72) 発明者 水野 誠司

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

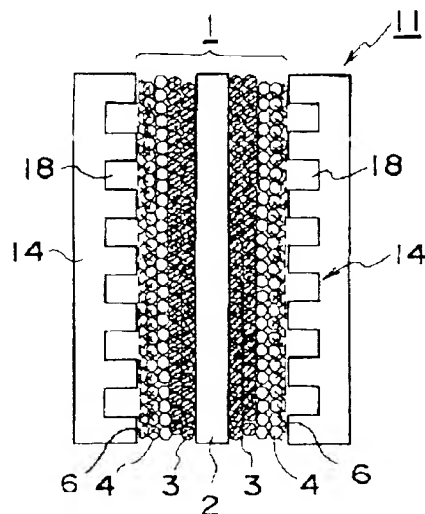
(74) 代理人 弁理士 吉田 研二 (外2名)

(54) 【発明の名称】 燃料電池の接合体およびその製造方法

(57) 【要約】

【目的】 ガス拡散性が向上し、余剰水の排水管理が容易となり、濃度分極による電池性能低下を防止できる燃料電池の接合体を得る。

【構成】 燃料電池の接合体1を、電解質膜2と、触媒を担持した炭素粒子を主体とする触媒反応層3と、炭素粒子及び撥水性樹脂からなり、少なくとも該触媒層と反対側の表面に該炭素粒子と絡み合った状態にて炭素短繊維を付着させてなるガス拡散層4と、で構成する。この接合体1においては、導電体の炭素繊維が絡み付いた状態でガス拡散層4の表面を覆うこととなるため、カーボンクロスやカーボンヘーハー等の電極基材を用いることなく、セパレータ(集電体)14との導電性の確保、ガス拡散層4の強度の確保及び触媒反応層3の保護を行いながら電極を薄くできるため、ガスの拡散性及び余剰水の排水性が向上し、高負荷時の出力特性が改善される。



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項1】 電解質と、

触媒を担持した炭素粒子を主体とする触媒層と、炭素粒子及び撥水性樹脂からなり、少なくとも該触媒層と反対側の表面に該炭素粒子と絡み合った状態にて炭素短繊維を付着させてなる拡散層と、から構成される燃料電池の接合体。

【請求項2】 炭素の短繊維からなる基材に炭素粒子及び撥水性樹脂を塗布又は含浸する工程と、該基材の塗布又は含浸した面と電解質とを、触媒を担持した炭素粒子を主体とする触媒層を介してホットプレスにて一体化する工程と、前記基材を電解質から剥がす工程と、からなる燃料電池の接合体製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【00001】

【産業上の利用分野】本発明は燃料電池の接合体およびその製造方法、特に電解質膜、触媒反応層、ガス拡散層からなる接合体のガス拡散層の改良に関する。

## 【00002】

【従来の技術】燃料電池は、原料ガスの反応エネルギーを直接的に電気エネルギーに変換する電池であり、図4、5に示されるようなセルを単位として発電を行う。このセル11は、接合体12がセパレータ14に挟持されて構成されており、接合体12は、電解質膜15と、この電解質膜の両面に形成される触媒反応層16と、この触媒反応層16上に被覆されるガス拡散電極17からなる。ここで、電解質膜15は燃料電池のイオン伝導体として機能するものであり、取扱いの利便等から固体高分子のものから一般的に使用されている。

【00003】このような燃料電池において、セパレータ14の挟持面に設けられているガス流路18に燃料ガス（例えば水素）及び酸化ガス（例えば酸素）をそれぞれ通す場合、これらはガス拡散電極17を介して触媒反応層16に供給される。この内、水素ガスはアノード側触媒反応層においてプロトンを生じ、外部回路に電子を放出する。生成したプロトンは、固体高分子電解質膜15を通過り酸素側に移動し、酸素側の触媒反応層（カソード側触媒反応層）において酸素と反応して水を生じる。

【00004】このような触媒反応層とガス流路18との間にはガス拡散電極17が施されており、該ガス流路から触媒反応層への燃料ガス又は反応ガスを良好に拡散させるように集電体14間との電子の伝達を行わせる機能、及び触媒反応層を集電体との摩擦による剥がれなどから保護する機能を有している。そのようなガス拡散電極の基材としては、主にカーボンブラックやカーボンクロス等が用いられている（例えば、特開昭60-211774号公報）。

## 【00005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、電極としてカーボンブラックやカーボンクロス等を用いると、その厚みに起因してガス流路から触媒までの距離が長くなり、ガスの拡散性の悪化、余剰水の排出性の悪化等が生じ、特に高負荷領域での出力には低下が生じる。また、単に電極を配設しないようにすると、導電性を悪化させる（通常、触媒反応層には撥水性を有する目的で非導電性のポリマー樹脂が添加されている）だけでなく、接触抵抗の増大及び摩擦等により触媒層が損傷を受ける等のおそれがある。

【00006】本発明は上記のような従来の問題を解消することを課題にされたもので、ガス拡散性が向上し、余剰水の排水管理が容易となり、濃度分極による電池性能低下を防止できる燃料電池の接合体を得ることを目的とする。

## 【00007】

【課題を解決するための手段】以上のような課題を解決するために、本願の請求項1記載の発明に係る燃料電池の接合体は、電解質と、触媒を担持した炭素粒子を主体とする触媒層と、炭素粒子及び撥水性樹脂からなり、少なくとも該触媒層と反対側の表面に該炭素粒子と絡み合った状態にて炭素短繊維を付着させてなる拡散層と、から構成されることを特徴とする。

【00008】また、請求項2記載の発明に係る燃料電池の接合体製造方法は、炭素の短繊維からなる基材に炭素粒子及び撥水性樹脂を塗布又は含浸する工程と、該基材の塗布又は含浸した面と電解質とを、触媒を担持した炭素粒子を主体とする触媒層を介してホットプレスにて一体化する工程と、前記基材を電解質から剥がす工程と、からなることを特徴とする。

【00009】なお、上記電解質として固体高分子電解質膜を用いた場合には、上記触媒層に所定の電解質溶液を含ませる必要がある。

## 【00010】

【作用】以上のようにして構成される請求項1記載の発明に係る燃料電池の接合体は、炭素粒子、カーボンブラックと撥水性樹脂粒子（シリコン）からなる拡散層に導電体である炭素繊維が絡み合っているため、炭素繊維が炭素粒子の表面を覆っているため、カーボンブラックやカーボンクロス等の電極基材を用いることなく、該層の強度の確保、触媒層の保護ができる。同時に、集電体上の導電性を確保しつつ電極を薄くできるため、ガスの拡散性及び余剰水の排水性が向上し、高負荷時の出力特性を改善できる。

【00011】請求項2記載の発明における燃料電池の接合体製造方法は、炭素の短繊維からなる基材に炭素粒子及び撥水性樹脂を塗布又は含浸させた後、該基材の塗布又は含浸した面と電解質とを触媒層を介してホットプレスにて一体化し、前記基材を電解質から剥がすようにしたことであり、触媒を担持した炭素粒子を主体とする部分及びガス拡散電極としての必要最小限の機能部位を残

した状態で、基材の余分な部位を容易に除去することができる。このため、請求項2記載の製造方法によれば、前記請求項1の接合体を前記作業工程によって安価に製造することができる。

#### 【0012】

【実施例】以下、本発明の実施例を図面に基いて説明する。図1は本発明の接合体の構成を示す概要図、図2はその拡大図である。なお、従来例と同一の構成要素には同一符号を付しその説明を省略する。尚、本実施例は電解質膜に陽イオン交換膜（例えばナフ・オン膜、米国デュポン社の商品名）を用いた、所謂、固体高分子型燃料電池を本発明を用いた場合にて説明する。

【0013】本実施例に係る接合体1は、電解質膜2と、この電解質膜2の両面に塗布される触媒反応層3と、この触媒反応層3上に被覆されるガス拡散層4及び6と、からなる。そして、触媒反応層3とガス拡散層4及び6とで電極を構成している。なお、従来例と同様に、電極基材（炭素）で構成されたセパレータ14は集電体の機能も兼ねる。

【0014】上記触媒反応層3は電極反応の触媒が担持された炭素微粒子と電解質膜の溶液とを混合して形成されて成り、ガス拡散層4及び6はフッ素系樹脂と炭素粒子とを混合した撥水層4を主体として、該炭素粒子に絡みあひなくとも該撥水層から集電体側に露出した炭素短繊維群6からなる。尚、本実施例においては、炭素短繊維が撥水層の一部の炭素粒子とのみ絡み合った状態としたが、導電性及び保護機能の面からは撥水層の厚さ方向にわたって絡み合っている方も良いし、更に触媒反応層まで達するような絡み具合とした方が良好である。このため、カーボンクロスやカーボンペーパー等の電極基材を用いた場合と比べて電極を薄くできるのはもちろんのこと、セパレータ（集電体）14上の導電性を確保しつつガス拡散層4の強度が確保でき、同時に触媒反応層3の品質も良くなる。このため、カーボンクロス等を用いた場合と比較してガスの拡散性及び全排水の排水性を向上させることができ、高負荷時の出力特性を改善できる。

【0015】次に上記の構成からなる本発明の接合体製造方法を図2に基いて具体的に説明する。まず、電極基材となるカーボンクロス（カーボン短繊維を織った糸を平織した糸）の厚さ0.4mm、幅7（50×6mm）を分散させ、撥水処理を施したカーボンブラック8を含め込み、ガス拡散層4を形成する。次に、このガス拡散層4の上面に、20%白金を担持したカーボン100と、白金0.4mg/cm<sup>2</sup>なる量と陽イオン交換樹脂溶液（樹脂分5%、水・有機溶媒）を固形分0.1mg/cm<sup>2</sup>なる量とを混合したスラリーを塗布して、触媒反応層3を形成する。このスラリーはカーボンブラック・炭素陽イオン交換膜の電解質膜2の両面に上記触媒反応層3が該電解質膜2側になるように挟み、120℃、1.00×10<sup>-2</sup>g/cm<sup>2</sup>でホットプレスにより圧

着する。そして、最後に上記カーボンクロスを剥がして接合体1とする。今回は基材として前記したカーボンクロスを用いたが、カーボンペーパーを用いても良い。また生産性を考慮しなければ、表面に剥離可能な形態の炭素短繊維を付着させ、吸水性（カーボンブラック及び撥水樹脂からなる溶液が若干浸透する性質）を有した基板であれば特に限定されることなく用いることができる。

【0016】この剥がし時において、カーボンクロスはホットプレスにより、カーボン短繊維は一部、そのカーボン短繊維の一部が触媒反応層側に絡み合う形で付着、脱落する。

【0017】なお、触媒反応層3は電解質膜2の陽イオン効果及びイオン交換樹脂による結合力で付着し、ガス拡散層はテフロンにより結合しており、カーボンクロスとの界面で剥がすことができる。尚、本実施例においては、ホットプレス時にカーボンクロスの凹凸によって触媒反応層が押圧される為、触媒反応層と電解質膜が部分的に構成され反応面積が増大し、好適である。このようにして製造された接合体は、撥水層と炭素短繊維群の厚みが0.1mmであり、カーボンクロスを剥がさずに構成した時の厚さの1/3〜1/4以下である。また、カーボンクロスを剥がした状態で表面に露出する炭素短繊維群の突出量は数十ミクロン程度である。また、該炭素短繊維群のセパレータに押しつけられた状態での電極面を覆う割合は50%程度であるが、それ以上でも問題ない。

【0018】次に、上記のように製造した接合体1をガス流路付きのカーボンフレームに接着、挟持して電池とし、電極面積1.44cm<sup>2</sup>、温度80℃で特性評価を実施した。その結果、本発明の接合体1は、ガス拡散層が薄くなった分、特に、ガスの放散性が向上し、濃度分極の低減が図れ、内部抵抗も1.5mΩで図3に示す曲線等の特性が得られ、前記図2に示す従来例のカーボンクロスを有し、内部抵抗1.8mΩで図3に示す曲線等の特性が得られる接合体1に比べ高性能化が図れた。

【0019】ここで、電解質膜をイオン交換樹脂、クにより凹凸を形成し、その上に触媒担持カーボンを付着する方法（特開平1-169069号公報）を採用すると、電子導電性を良くするため等の理由により撥水性の樹脂をガス拡散層に混合あるいは被覆する必要が生じ、結果的に集電体との接触抵抗が悪くなっていたが、本発明においてはこのような事態が生じない。また、カーボンクロス等を用いない場合には、集電体との摩擦や電解質膜の膨張、収縮等により触媒反応層が脱落し、耐久性に劣るというような問題もあったが、本実施例では、拡散層に導電体の繊維（炭素繊維）を絡み付けてその表面を覆っているため、このような問題が生じない。

#### 【0020】

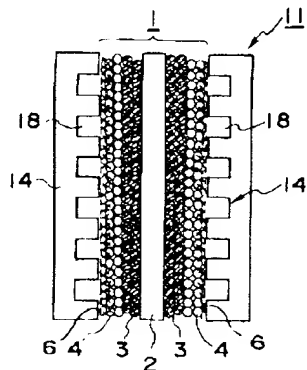
【発明の効果】以上のように、本発明に係る燃料電池の

接合体によれば、拡散層に導電体の繊維（炭素繊維）が絡み付いてその表面を覆っているため、拡散層の強度を確保し、触媒層の保護及び集電体との導電性を確保しつつ電極を薄くできる。これにより、ガスの拡散性及び余剰水の排水性が向上し、高負荷時の出力特性を改善できる。

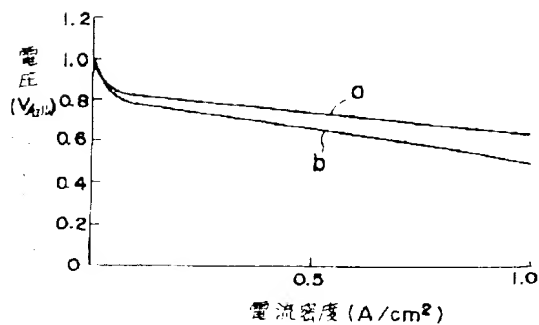
【0021】また、炭素の短繊維からなる基材の撥水性樹脂を塗布又は含浸した面と電解質とを触媒層を介してホットプレスにて一体化した後、前記基材を電解質から剥がすようにしたことにより、触媒を担持した炭素粒子を主体とする部分及び拡散層として機能する部分を残しながら、炭素の短繊維からなる基材の余分の部分を除去することができる。このため、拡散層の強度の確保、触媒層の保護及び集電体との導電性の確保をしつつ、ガス流路から触媒までの距離が短縮できることとなり、本発明に係る燃料電池の接合体を簡単な作業工程によって安価に製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】



【図3】



【図1】本発明の接合体を適用した燃料電池の単セルの構成を示す概要図である。

【図2】本発明の接合体の一部の拡大図である。

【図3】図1の単セルを適用した電池と従来の電池との特性比較図である。

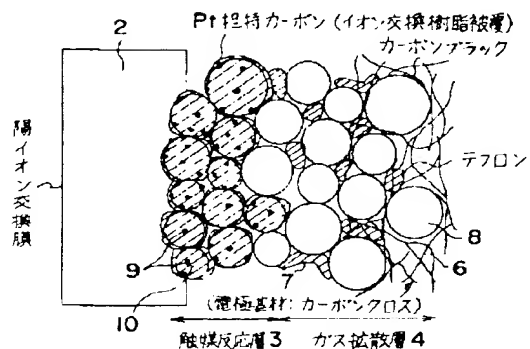
【図4】従来の燃料電池の単セルの概要を示す斜視図である

【図5】従来の燃料電池の単セルの概要を示す側面図である

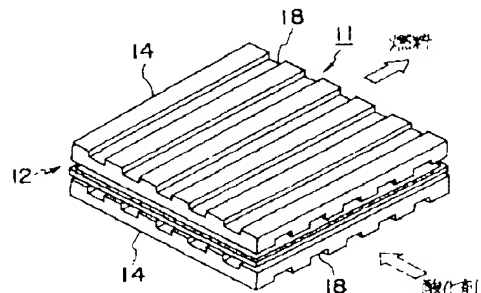
【符号の説明】

- 1 接合体
- 2 電解質膜
- 3 触媒反応層
- 4 ガス拡散層
- 6 短繊維（ガス拡散層）
- 8 カーボンブラック
- 10 カーボン

【図2】



【図4】



【図 5】

